

Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/000846

International filing date: 24 January 2005 (24.01.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP
Number: 2004-016486
Filing date: 26 January 2004 (26.01.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 03 March 2005 (03.03.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

08.02.2005

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 4 年 1 月 2 6 日
Date of Application:

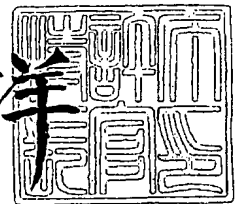
出 願 番 号 特 願 2 0 0 4 - 0 1 6 4 8 6
Application Number:
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 4 - 0 1 6 4 8 6]

出 願 人 独立行政法人産業技術総合研究所
Applicant(s):

2 0 0 4 年 1 2 月 2 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小 川 洋



出証番号 出証特 2 0 0 4 - 3 1 1 0 1 1 6

【書類名】	特許願
【整理番号】	2004000580
【あて先】	特許庁長官殿
【国際特許分類】	H01L 43/06
【発明者】	
【住所又は居所】	茨城県つくば市東 1-1-1 独立行政法人産業技術総合研究所 つくばセンター内
【氏名】	白川 直樹
【特許出願人】	
【識別番号】	301021533
【氏名又は名称】	独立行政法人産業技術総合研究所
【代表者】	吉川 弘之
【電話番号】	029-861-3280
【提出物件の目録】	
【物件名】	特許請求の範囲 1
【物件名】	明細書 1
【物件名】	図面 1
【物件名】	要約書 1

【書類名】特許請求の範囲

【請求項 1】

試料を固定した試料ロッドと、前記試料ロッドを装着し、該試料ロッドの周囲にヘリウム 3 により冷却を行う空間を形成する主パイプを備えたヘリウム 3 冷凍機と、

前記ヘリウム 3 冷凍機を装着する筒体と、該筒体外周にヘリウム 4 による冷却手段を備え、超伝導磁石、磁場形成手段、温度調整手段、及び磁場調整手段を備えた MPMS 磁化測定装置とを備えたヘリウム 3 冷凍機利用磁化測定装置において、

前記主パイプを上方から順に上部支持管、凝縮管、下部内側管、及び該下部内側管との間に断熱真空室を形成する外側管とから構成し、

前記下部内側管をチタンにより成形したことを特徴とするヘリウム 3 冷凍機利用磁化測定装置。

【請求項 2】

前記外側管を銅により成形したことを特徴とする請求項 1 記載のヘリウム 3 冷凍機利用磁化測定装置。

【請求項 3】

前記凝縮管を銅により成形したことを特徴とする請求項 1 または請求項 2 記載のヘリウム 3 冷凍機利用磁化測定装置。

【請求項 4】

前記上部支持管を SUS により成形したことを特徴とする請求項 1 ～請求項 3 のいずれか一つに記載のヘリウム 3 冷凍機利用磁化測定装置。

【書類名】明細書

【発明の名称】ヘリウム3冷凍機利用磁化測定装置

【技術分野】

【0001】

本発明は、各種物質の極低温時の物性を研究するのに必要な磁化測定装置に関し、特に、従来からヘリウム4を用いて1.8 K程度の極低温を発生させることができるMPMSを利用し、更にヘリウム3を用いるとともに、簡単な装置を付加するのみで0.3 Kまでの極低温を発生させ、容易に所望の磁化測定を行うことができるようにしたヘリウム3冷凍機利用磁化測定装置において、確実に所望の低温を得ることができ、バックグラウンド信号を減らして正確な温度信号を得ることができるようにしたヘリウム3冷凍機利用磁化測定装置に関する。

【背景技術】

【0002】

磁性体・超伝導体などの物性を研究するのに、磁化測定は欠かすことのできない手段である。現在、この磁化測定については、米国QUANTUM DESIGN社のMPMS (Magnetic Property Measurement System) という機械が、事実上の標準測定装置として市場を独占している。この装置の特色は二つあり、超伝導量子干渉素子 (SQUID) を用いたことにより高感度を実現したこと、測定が完全に自動化されており無人でデータが取れることである。

【0003】

しかしながら、この装置の測定温度の下限は液体ヘリウム4の減圧による1.8 Kにとどまっており、それより転移温度の低いRu系やRe系の超伝導酸化物、種々の重い電子系超伝導体、有機磁性体、分子磁性体などの研究には使用できなかった。

【0004】

特願2002-248325の発明（「ヘリウム3冷凍機利用磁化測定装置」）において、液体ヘリウム3を利用した冷凍作用により、MPMSの試料室内に0.3 Kまで冷却された空間を作り出し、0.3 Kから1.8 Kまでの温度における磁化測定を可能とする手段が示されている。

【0005】

即ち、図2は本発明者によって先に提案しているヘリウム3冷凍機利用磁化測定装置の構造を模式的に示すと共に、磁化測定装置用制御装置のソフト構成を示した図である。同図におけるヘリウム3冷凍機利用磁化測定装置の基本構成は、従来から上記のようにMPMSと称して広く用いられている装置の主要構成部分を利用した磁化測定装置1を用いている。この装置においては、内部の液体ヘリウム容器2に上部の開口から、後述するようなヘリウム3冷凍装置20を装着可能とし、このヘリウム3冷凍装置20内に、従来からMPMSに用いられているものと同様に試料ロッド5を装着することができるようにしている。

【0006】

この磁化測定装置1における測定装置としての基本機能は、試料ロッド5に固定した磁性試料によって発生する微小磁場を、超伝導体のジョセフソン効果を応用したSQUID素子で検出することができるようになっており、磁性物質の磁化率、磁化曲線、及び超伝導体試料のマイスナー効果の測定等を行うことができる。

【0007】

上記磁化測定装置1及びヘリウム3冷凍装置20等の、より詳細な構成は先の出願明細書中に詳述しているのでここでの詳細な説明は省略するがその概要は、液体ヘリウム4を収容する液体ヘリウム容器2内に、その上部開口から円筒状の外筒6が吊り下げられており、その下端面には液体ヘリウム容器2内に貯留される液体ヘリウム4中に延びて開口する細管7を備えている。

【0008】

この外筒6は液体ヘリウム容器2の上方外部に延び、その側壁部にポンプ接続用開口19を備えており、ポンプ接続用開口19には従来のMPMSにおいて備えている主ポンプ

9が配管10によって接続されている。更にこの装置においては前記配管10に対して図2に示すように補助ポンプ11も接続しており、後述するように、主ポンプ9の作動に加えてこの補助ポンプ11を作動することによって、試料室12内をより低温にすることができるようになっている。

【0009】

外筒6の内側には円筒状の試料室内筒8を備え、その上端部には試料装着開口を形成しており、その直下に測定空間を大気から遮断するためのバルブ、試料ロッドが一部太くなっている部分をキャッチして試料ロッドを上下動させる駆動機構33等が存在する。また試料装着開口に対しては、ボックス16の下端開口17と、密封性良いウイルソンシール等のシール部材18により密封接続できるようになっている。

【0010】

下方に複数の試料片、ヒータ、温度センサ等の測定用部材21を固定した試料ロッド5は、ヘリウム3冷凍装置20の蓋36を開けることにより、主パイプ23の上端部に形成した試料ロッド装着開口から主パイプ23内に挿入して装着可能となっている。なお、上記のように試料ロッド5を主パイプ23内に挿入した際には、試料ロッド装着開口24部分に設けたウイルソンシール等のシール部材により密封性良くシールを行うことができるようにしている。また、図示実施例においては、主パイプ23の下部外周に断熱真空部材を設け、主パイプ23内部をその外部の試料室12の空間から断熱を行うようにしている。

【0011】

ヘリウム3冷凍装置20は、主パイプ23の上部側壁に設けた開口と、ボックス16の側壁の開口との間をベローズ28によって接続し、ヘリウム3のガスハンドリングシステム30によって、後述するように主パイプ23内の排気、主パイプ23へのヘリウム3の導入、気化ヘリウム3の排出による減圧を行うことができるようにしている。なお、ヘリウム3のガスハンドリングシステム30と開口27との間は配管31により接続し、その途中にバルブ32を設けている。

【0012】

また、このようなヘリウム3のガスハンドリングシステム30を設けたものにおいて、主パイプ23をボックス16に対して移動可能とし、それにより、磁化測定装置1の外筒6に固定されるボックス16に対して、移動装置33により主パイプ23を上下動可能とし、試料ロッド5を測定時に上下動させ、外筒6の外周に巻き付けられたピックアップコイルに、試料の磁化に比例した誘導起電力を発生せしめ、SQUIDにて検出する。

【0013】

ボックス16の側壁26から内部に対して信号線34を延出しており、主パイプ23に試料ロッド5を装着した際には、試料ロッド5の上端部に設けたコネクタに接続する。それにより、図2に示すような磁化測定装置用制御装置40と信号の授受を可能としている。なお、磁化測定装置1においても、その内部の磁場制御、温度制御のため、磁化測定装置用制御装置40と接続可能となっている。

【0014】

磁化測定装置用制御装置40は図2に示すように、従来から磁化測定装置1の制御用ソフトとして既に存在するMV(Multi-View)ソフト41を用いて作動させることができ、本発明においてはヘリウム3冷凍装置20を用いてヘリウム3の0.3~2Kの温度範囲の磁化測定を行うため、図中i-Helium3として示しているソフト42を更に用いている。

【0015】

このi-Helium3のソフト42によって、試料ロッド5上の試料・温度センサー・ヒーターとの入出力を単独で直接行うことができ、また、この磁化測定装置が所定の作動を行うことができるように、予め利用者が測定作動指令としての測定用基本データ入力43を行うようにしている。それにより、測定作動中はi-Helium3のソフトの指令が、現在広く用いられているHSPソフト44を介してMVソフト41を作動させ、MVソフト41のシーケンス制御手段によって、磁化測定装置1内の磁場制御、試料の磁化測定、更には試料

磁化測定信号の入力処理等を行うことができるようにしている。

【0016】

上記のような装置において、バルブ32を解放し、ヘリウム3のガスハンドリングシステム30によって主パイプ23内を高真空に排気しながら、磁化測定装置用制御装置40におけるMPMSの制御ソフトであるMVソフト41の機能により主ポンプ9を作動し、試料空間を1.8 Kに冷却する。ここでロータリポンプ等からなる補助ポンプ11を更に稼働させると、試料空間の温度を約1.5 Kに下げることができる。

【0017】

この状態で、ヘリウム3ガスハンドリングシステム30の作動により、液体窒素トラップを通じてヘリウム3ガス (^3He ガス) を主パイプ23内に導入すると、ヘリウム3ガスが液化され、主パイプ23の下方に貯留する。所定量の液化ヘリウム3ガスの貯留後、ヘリウム3ガスハンドリングシステム30の作動により閉鎖排気系を用いて主パイプ23内のヘリウム3ガスを排気することにより、試料ロッド5の下端部に取り付けた試料の周囲を0.3 Kの低温に維持することが可能となる。その後は、測定者の必要に応じて試料の温度と磁場を制御しつつ、MPMSの測定ソフトの機能によりデータを取得していくことにより、上記装置を利用することができる。

【特許文献1】特願2002-248325号

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0018】

上記の出願ではヘリウム3冷凍機を構成する材料について示されていないが、冷凍機の主パイプ材料は熱伝導率が小さい必要があり、一般に低熱伝導材料としてこの種の冷凍機に常用されるステンレススチール（以下SUS）を用いた場合には、磁化測定においては望ましくないバックグラウンド（試料以外、この場合は主パイプの材料から来る、試料の磁化とは無関係な信号）を生じていた。

【0019】

その結果、印加磁場を10 Gauss以上に上げた場合、バックグラウンドが大きくなり過ぎて試料からの信号がほとんど見えなくなってしまう、測定に困難を来していた。

【0020】

それだけでなく、SUSは非磁性とされているが実際にはやや強磁性的に振舞うため、バックグラウンドが磁場に対してヒステリシスを持つ。即ち、高い磁場まで上げた後に磁場を落としても、バックグラウンドがあまり減らずに、高磁場での値で高止まりしてしまう現象が生じていた。あらかじめ試料なしでバックグラウンドだけを測定しておいて、試料を入れた場合との差を取ることでバックグラウンドを差し引こうとしても、バックグラウンドにヒステリシスがあると、この差し引きは極めて実行が困難となる。

【0021】

MPMS装置は1, 5, 7 Tの超伝導磁石を備えたモデルが存在するが、上記の理由により、ヘリウム3冷凍機を利用する場合には、各モデルの限界まで磁場を上げて測定することは不可能であった。

【0022】

したがって本発明は前記の現状を踏まえ、市販の磁化測定装置（MPMS）を利用して、0.3 Kまでの磁化測定を可能とするために先に提案しているヘリウム3冷凍機利用磁化測定装置において、MPMSが発生することのできる上限磁場まで印加しても磁化測定が可能となり、確実に0.3 K迄の磁化測定ができるようにしたヘリウム3冷凍機利用磁化測定装置を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0023】

本発明によるヘリウム3冷凍機利用磁化測定装置は、上記課題を解決するため、試料を固定した試料ロッドと、前記試料ロッドを装着し、該試料ロッドの周囲にヘリウム3により冷却を行う空間を形成する主パイプを備えたヘリウム3冷凍機と、前記ヘリウム3冷凍

機を装着する筒体と、該筒体外周にヘリウム 4 による冷却手段を備え、超伝導磁石、磁場形成手段、温度調整手段、及び磁場調整手段を備えた MPMS 磁化測定装置とを備えたヘリウム 3 冷凍機利用磁化測定装置において、前記主パイプを上方から順に上部支持管、凝縮管、下部内側管、及び該下部内側管との間に断熱真空室を形成する外側管とから構成し、前記下部内側管をチタンにより成形したものである。

【0024】

また、本発明による他のヘリウム 3 冷凍機利用磁化測定装置は、前記ヘリウム 3 冷凍機利用磁化測定装置において、前記外側管を銅により成形したものである。

【0025】

また、本発明による他のヘリウム 3 冷凍機利用磁化測定装置は、前記ヘリウム 3 冷凍機利用磁化測定装置において、前記凝縮管を銅により成形したものである。

【0026】

また、本発明による他のヘリウム 3 冷凍機利用磁化測定装置は、前記ヘリウム 3 冷凍機利用磁化測定装置において、前記上部支持管を SUS により成形したものである。

【発明の効果】

【0027】

本発明は上記のように構成したので、市販の磁化測定装置 (MPMS) を利用して、微量の試料ないしは磁性の弱い試料を用いた場合にも、確実に 0.3 K までの磁化測定が可能となるという利点がある。

【発明を実施するための最良の形態】

【0028】

本発明は市販の磁化測定装置 (MPMS) を利用して、確実に 0.3 K までの磁化測定を実現するため、試料を固定した試料ロッドと、前記試料ロッドを装着し、該試料ロッドの周囲にヘリウム 3 により冷却を行う空間を形成する主パイプを備えたヘリウム 3 冷凍機と、前記ヘリウム 3 冷凍機を装着する筒体と、該筒体外周にヘリウム 4 による冷却手段を備え、超伝導磁石、磁場形成手段、温度調整手段、及び磁場調整手段を備えた MPMS 磁化測定装置とを備えたヘリウム 3 冷凍機利用磁化測定装置において、前記主パイプを上方から順に上部支持管、凝縮管、下部内側管、及び該下部内側管との間に断熱真空室を形成する外側管とから構成し、前記下部内側管をチタンにより成形したものである。

【実施例 1】

【0029】

上記のような本発明者が先に提案した装置において、特に主パイプ 23 についてこれを大きく 4 つの部材から構成されている。即ち、測定する試料から最も遠い最上部に位置しその側部にベローズ 28 が接続する上部支持管 41 と、この上部支持管 41 の下部に固定支持され後述するように確実に 1.6 K を維持して凝縮作用を行うことができるようにした凝縮管 42 と、この凝縮管 42 の下部に固定され、その下方に形成される断熱真空室 43 の外側壁を形成する外側管 44 と、前記断熱真空室 43 の内側壁を形成する下部内側管 45 とからなっている。また、前記外側管 44 と下部内側管 45 の下端は閉じられており、その間に断熱真空室 43 が形成されている。

【0030】

本発明は上記のような管体の接続構成と、各管体の適切な材料選択によって所望の目的を達するものであり、前記各種の管の内、上部支持管 41 は測定する試料から最も遠い位置にあり、測定に影響を与えないので、従来の主パイプと同様に安価で丈夫な SUS 304 で管体を成形している。

【0031】

上部支持管 41 の下部に固定支持され、主パイプ 23 の中間部に位置する凝縮管 41 は銅によってその管体を成形している。このように凝縮管 41 を銅によって成形することにより、後述する外側管 44 の底からの熱伝導を直接効率よく受けて、この部分で確実に 1.6 K の温度を維持し、その冷却作用によって内部のヘリウム 3 ガスを液化できるようにしている。

【0032】

断熱真空室 43 の外壁を形成する外側管 44 は、磁性が小さく、熱伝導の良い銅を用いている。特にこの発明において外側管 44 に熱伝導の良い銅を用いる理由は、前記ヘリウム 3 冷凍機が挿入される MPMS の試料室 12 は、下から冷たいヘリウムガスを引き込むことで内部を 1.6 K まで冷却できるようになっている。それにより、ヘリウム 3 の排気による 0.3 K への冷却前に必要な、ヘリウム 3 ガスを液化するプロセスの際に、前記のように凝縮管 41 が、この外側管 44 の底からの熱伝導によって確実に 1.6 K に冷却されるようにしたものである。

【0033】

断熱真空室 43 の内側壁を形成する下部内側管 45 は従来用いられていた SUS の代わりにチタンを用いている。このように主パイプ 23 の主体をなす下部内側管 45 をチタンによって成形した場合には、測定試料を入れていないときに存在するバックグラウンド信号を、1 T の磁場を印加した際でも 10^{-4} emu 以下に減らすことができた。それにより、極端に磁性の小さい試料を測定する場合を除いて、この MPMS 装置の上限磁場までの測定を確実に行うことができるようになった。

【0034】

主パイプ 23 について、前記のような下部内側管 45 以外に上部支持管 41 もチタンによって成形しても良いが、チタン成型品は高価であり、上部支持管 41 は上記のように試料から遠く離れているので磁性はやや強いものの、熱伝導が小さくて試料空間への熱流入を抑えることができ、しかも強度が充分得られる SUS を用いることができる。また、下部内側管材料にチタンを用いる場合には、バックグラウンドの磁場に対するヒステリシスは極めて小さくなり、実用上無視できるようになる。したがってバックグラウンドの差し引きが問題なく行なえるようになったので、極めて磁性の小さい試料でも測定できるようになる。

【産業上の利用可能性】

【0035】

本発明は市販の磁化測定装置 (MPMS) を利用して、確実に 0.3 K までの磁化測定が可能となるので、極低温下における磁性の小さな試料について、磁化特性等の物性を高感度で測定する分野に有効に利用することができる。

【図面の簡単な説明】

【0036】

【図 1】本発明の実施例の断面図である。

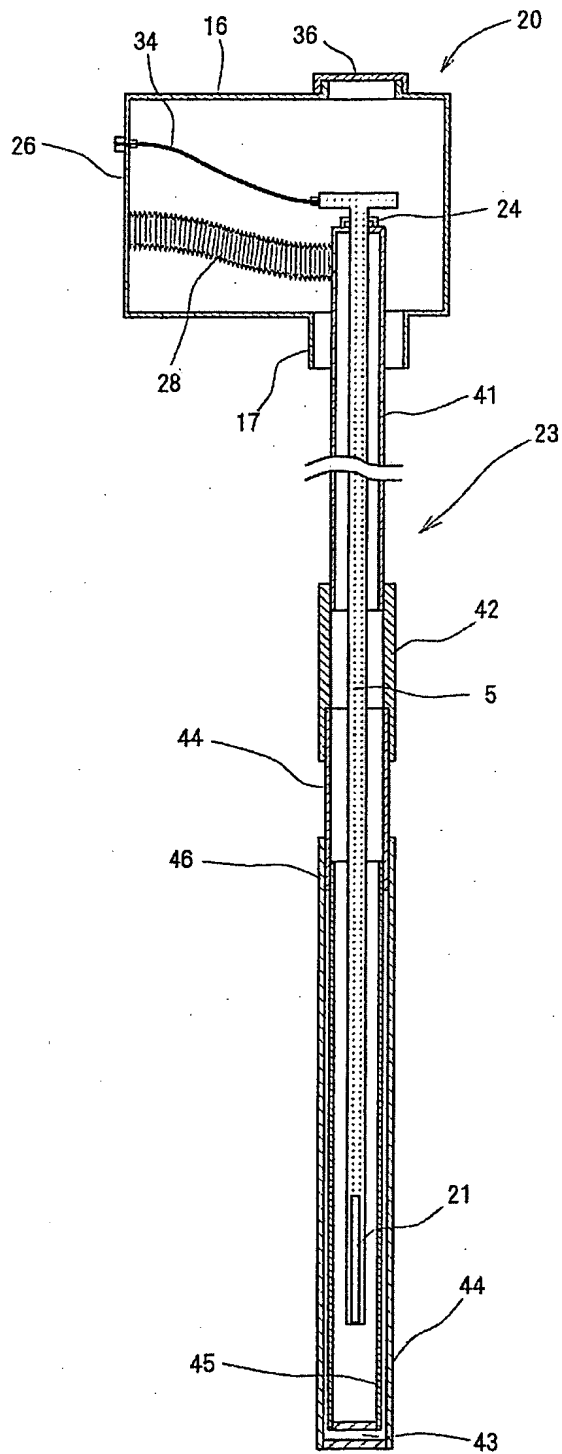
【図 2】本発明者が先に提案した、本発明を適用するヘリウム 3 冷凍機利用磁化測定装置の概要を示す図である。

【符号の説明】

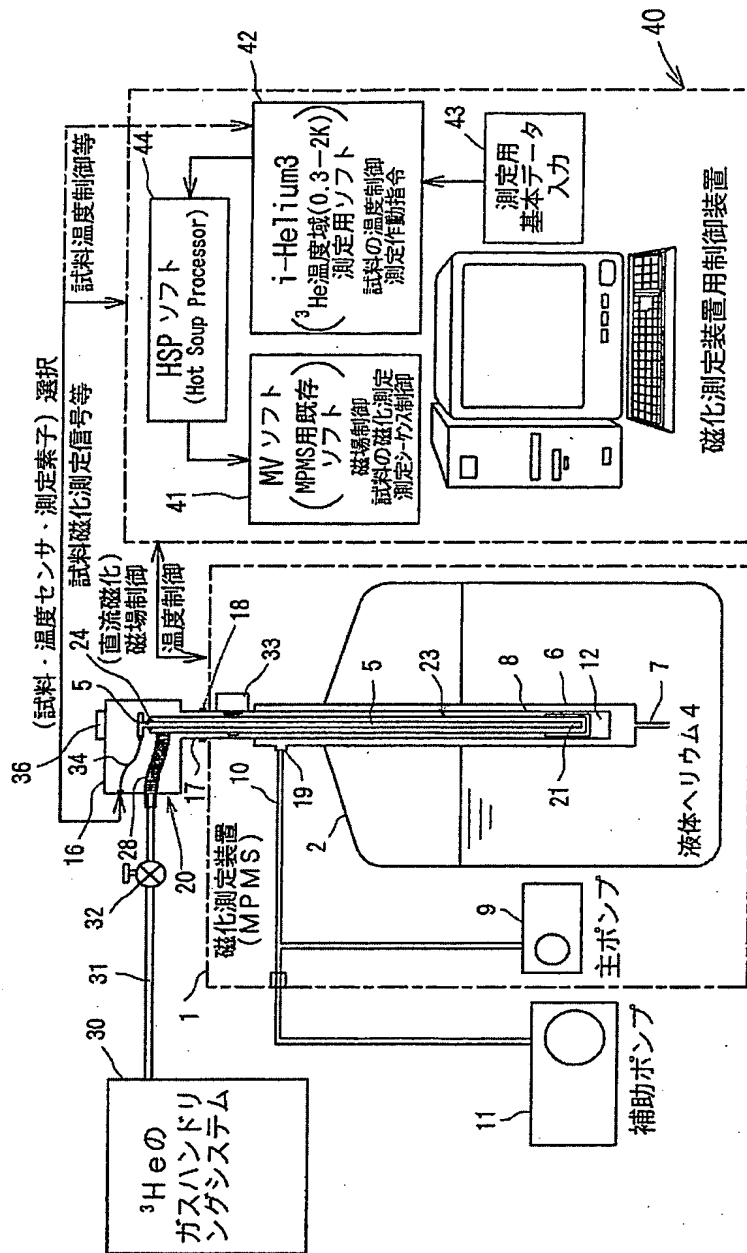
【0037】

- 5 試料ロッド
- 16 ボックス
- 20 ヘリウム 3 冷凍装置
- 21 測定用部材
- 23 主パイプ
- 28 ベローズ
- 41 上部支持管
- 42 凝縮管
- 43 断熱真空室
- 44 外側管
- 45 下部内側管

【書類名】 図面
【図 1】



【図 2】



【書類名】要約書

【要約】

【課題】 先に提案している市販の磁化測定装置 (MPMS) を利用して、0.3 K までの磁化測定を可能とするヘリウム 3 冷凍機利用磁化測定装置において、MPMS が発生することのできる上限磁場まで印加しても確実に磁化測定を可能とする。

【解決手段】 主パイプ 23 を、最上部に位置しその側部にペローズ 28 が接続する上部支持管 41 と、この下部に固定支持される凝縮管 42 と、この下部に固定され、その下方に形成される断熱真空室 43 の外側壁を形成する外側管 44 と、前記断熱真空室 43 の内側壁を形成する下部内側管 45 とから構成する。上記各管において、下部内側管 45 をチタンにより成形する。それによりバックグラウンド信号を減らすことができ、この MPMS 装置の上限磁場までの測定を確実に行うことができるようにする。また、上部支持管 41 は SUS、凝縮管 42 及び下部外側管 44 は熱伝導の良い銅により成形する。

【選択図】 図 1

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2004-016486
受付番号	50400118515
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成16年 1月27日

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成16年 1月26日

特願 2004-016486

出願人履歴情報

識別番号

[301021533]

1. 変更年月日

2001年 4月 2日

[変更理由]

新規登録

住所

東京都千代田区霞が関1-3-1

氏名

独立行政法人産業技術総合研究所